

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

5-4336

(11)Publication number : 02-199020
 (43)Date of publication of application : 07.08.1990

(51)Int.CI. C01F 7/02
 C08K 3/22

(21)Application number : 01-019244 (71)Applicant : SHOWA DENKO KK
 (22)Date of filing : 26.01.1989 (72)Inventor : KITAYAMA MIKITO
 YOKOO KAZUYUKI
 ODA YUKIO
 SHIBUE YUJI
 KAWAI YASUO
 MOROOKA OSAMU

(54) ALUMINUM HYDROXIDE FOR RESIN FILLER AND PRODUCTION THEREOF

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the title aluminum hydroxide with both low specific surface area and oil absorption by centrifugation of a secondary flocculated particle slurry of specific Al(OH)_3 produced by the Bayer process.

CONSTITUTION: A secondary flocculated particle slurry of Al(OH)_3 consisting of primary particles 1–4 μm in average size is first prepared by introducing (1) a mixture prepared by converting into crystalline Al(OH)_3 part of an alumina gel produced by introducing an Al salt into a sodium aluminate solution obtained by the Bayer process into (2) sodium aluminate to be decomposed. Thence, this slurry is fed into a continuous-type centrifugal separator and put to solid– liquid separation by application of a centrifugal force of $\geq 1000\text{G}$, thus obtaining the objective Al(OH)_3 for resin filler having the following characteristics: (a) average particle size – 2–8 μm ; (b) surface roughness factor $\text{Sn/Sc} - < 3$ (Sn is specific surface area determined by the nitrogen absorption technique; Sc is specific surface area calculated from the average particle size using the sphere approximation technique); and (c) linseed oil absorption (in compliance with JIS K-5101) – $\leq 30\text{cc}/100\text{g}$.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of rights]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑩ 日本国特許庁 (JP)

⑪ 特許出願公告

⑫ 特許公報 (B2)

平5-4336

⑬ Int. Cl.⁵
C 01 F 7/02

識別記号

C 08 K 3/22

G 9040-4G
D 9040-4G
Z 9040-4G
KAE 7167-4J

⑭ 公告 平成5年(1993)1月19日

請求項の数 2 (全6頁)

⑮ 発明の名称 樹脂フライ用酸化アルミニウムとその製造法

⑯ 特願 平1-19244

⑯ 公開 平2-199020

⑯ 出願 平1(1989)1月26日

⑯ 平2(1990)8月7日

⑰ 発明者 北山 幹人 神奈川県横浜市神奈川区恵比須町8 昭和電工株式会社横浜工場内

⑰ 発明者 横尾 和之 神奈川県横浜市神奈川区恵比須町8 昭和電工株式会社横浜工場内

⑰ 発明者 小田 幸男 神奈川県横浜市神奈川区恵比須町8 昭和電工株式会社横浜工場内

⑰ 発明者 渋江 勇次 神奈川県横浜市神奈川区恵比須町8 昭和電工株式会社横浜工場内

⑰ 発明者 川合 康夫 神奈川県横浜市神奈川区恵比須町8 昭和電工株式会社横浜工場内

⑰ 発明者 師岡 修 神奈川県横浜市神奈川区恵比須町8 昭和電工株式会社横浜工場内

⑯ 出願人 昭和電工株式会社 東京都港区芝大門1丁目13番9号

⑯ 代理人 弁理士 寺田 實

審査官 寺本 光生

⑮ 参考文献 特開 昭55-75435 (JP, A) 特開 昭54-42399 (JP, A)

1

2

⑯ 特許請求の範囲

1 i 平均粒子径が $2 \sim 8 \mu\text{m}$ ii 表面粗度係数 $S_r/S_c < 3$ (S_r は窒素吸着法にて測定された比表面積を、 S_c は平均粒子径より球近似で算出された比表面積を表す)iii アマニ油吸油量 (JIS K5101単拠) が $30\text{cc}/100\text{g}$ 以下

であることを特徴とする樹脂フライ用酸化アルミニウム。

2 バイヤー法により得た平均径 $1 \sim 4 \mu\text{m}$ の 1 次粒子より成る酸化アルミニウムの 2 次凝集粒のスラリーに連続式遠心分離装置を用いて 1000G 以上の遠心力を加えて該スラリーの固形分を濃縮分離することを特徴とする請求項 1 記載の樹脂フライ用酸化アルミニウムの製造法。

発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は、樹脂フライ用に好適な酸化アルミニウムとその製造法に関する。

5 〔従来の技術〕

酸化アルミニウムを樹脂フライ用に使用することを公知である。

酸化アルミニウムは、化学式で Al(OH)_3 または $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ と書き表わすことができ、 200°C 以上の温度で結晶内より水蒸気を放出し、その際、大きな吸熱を示すため、樹脂フライとして用いた場合、優れた難燃性が得られる。また、酸化アルミニウムは、優れた低発煙性、耐アーキ・耐トラッキング性を有しており、さらに低コストであることから、極めて有用な難燃剤である

と言える。

従来この用途にはバイヤー法から得られた平均径50~60μm程度の粗粒の水酸化アルミニウムをそのまま、あるいは、ポールミル、その他の粉碎機で粉碎したものが用いられてきた。しかし、粗粒の水酸化アルミニウムをフライー用途に用いた場合、樹脂との相溶性が悪い。また、粘度の低い樹脂に充填した場合には、水酸化アルミニウムが沈降する。さらには、なめらかな成形体表面が得られない、難燃効果に劣るなどの問題があつた。これを防ぐために、粉碎して粒子径を細かくした水酸化アルミニウムが樹脂フライー用途に広く使用されているが、粉碎によって沈降が起り難い粒子径（一般に平均で10μm以下）まで細かくすることは多大なエネルギーを必要とする。また、粉碎された水酸化アルミニウムは、その結晶が破壊され、多量のチッピングによる微粒を含むため、粉体の比表面積が大きく、結果として、吸着水分量が多いという問題があつた。吸着水分量の多い水酸化アルミニウムをフライーとして用いることは、用途によってはフライーの分散不良、樹脂の硬化不良、成形体の硬度低下、絶縁性不良、混練時の発泡などの原因となり、好ましくないことがある。さらに、粉碎物について一般に言えることであるが、微粒になる程、フライーの吸油量が大きくなり、樹脂への高充填が難かしくなる。

〔発明が解決しようとする課題〕

上記の課題を解決するため、粉碎水酸化アルミニウムをステアリン酸、及び、その金属塩やシランカッピング剤などの表面処理剤で表面することははある程度は有効であるが、コストが高くなるという欠点がある。

また、米国特許第2549541号、及び、仏国特許第2041750号などに記載されたアルミナゲルを析出誘発材料として微粒の水酸化アルミニウムを析出させる方法は古くから知られている。この方法により得られた微粒水酸化アルミニウムは、同程度の粉碎水酸化アルミニウムに比べ確かに比表面積は小さく、吸着水分量は少ないが、微細な1次粒子が凝集した2次凝集粒の形態を有しており、吸油量が非常に大きく、フライー用途として樹脂に十分な難燃性を付与させるのに十分な量の水酸化アルミニウムを充填することは、非常に困難であつた。公表特許公報昭59-501711には粉碎水酸

化アルミニウムを析出誘発材料として微粒水酸化アルミニウムを析出させる方法が開示されているが、この方法により得られた水酸化アルミニウムも同様に吸油量が非常に大きいことが判つていい。

特願昭63-129527号には、1次粒子平均径を4~8μmに限定した2次凝集粒を1次粒子平均径にはば等しくなるまで粉碎することを特徴とする低比表面積で樹脂充填粘度の低い人造大理石用水酸化アルミニウムの製造方法が開示されている。この方法によれば、確かに吸油量の低い水酸化アルミニウムが得られるが、ポールミルによつて2次凝集粒の解碎を行なうため、1次粒子の破壊がわずかであるが起り、本発明の目的とする低比表面積の微粒水酸化アルミニウムを得ることは極めて困難であつた。

〔課題を解決するための手段〕

かかる事情に鑑み、本発明者等はフライー用途に適した低吸油量で、かつ、低比表面積の微粒水酸化アルミニウムを安価に提供することを目的に鋭意検討した結果、連続式遠心分離装置より発生する大きな遠心効果が、水酸化アルミニウムの2次凝集粒を、1次結晶粒子を破壊することなく、極めて有効に解碎することを見出し、本発明を完成するに至つたものである。

すなわち、本発明は、

1 i 平均粒子径が2~8μm

ii 表面粗度係数 $S_R/S_C < 3$ （ここで S_R は窒素吸着法にて測定された比表面積を、また、 S_C は平均粒子径より球近似で算出された比表面積、すなわち、

$$S = \frac{6}{\rho \cdot d}$$

ρ ：水酸化アルミニウムの比重

d ：平均粒子径

を表わす）

iii アマニ油吸油量（JIS K5101準拠）が30cc/100g以下

上記i)~iii)より表わされる樹脂フライー用低比表面積微粒水酸化アルミニウムと、
2 バイヤー法により得た平均径1~4μmの1次粒子より成る水酸化アルミニウムの2次凝集粒に溶媒を加えてスラリーとし、連続式遠心分離装置を用いて1000G以上の遠心力を該スラリ

ーに加えて固形分を濃縮分離することにより水酸化アルミニウムの2次凝集粒を解碎することを特徴とする前記の樹脂フライー用低比表面積微粒水酸化アルミニウムの製造法とを提供することにある。

まず、請求項1記載の発明の数値限定理由を説明する。

水酸化アルミニウムの平均粒子径は、沈降法にて測定されたものであり、 $2\sim8\mu\text{m}$ の範囲内にあることが必要である。平均粒子径が $2\mu\text{m}$ より小さいと、吸油量が大きく、樹脂への高充填ができないくなる。また、比表面積が大きくなり吸着水分量が多くなるなどの欠点が生じてくる。

平均粒子径が $8\mu\text{m}$ より大きいと沈降の問題が生じてくる。尚、沈降の点では、より好ましくは平均粒子径は $4\mu\text{m}$ 未満である。

表面粗度係数は、窒素吸着法にて測定された比表面積 S_R と、平均粒子径より球近似で算出された比表面積 S_c との比、 S_R/S_c で表わされ、3未満であることが必要である。

表面粗度係数は、いわば水酸化アルミニウム粒子表面の荒れ具合、及び、チッピング粒子の量を表わしており、この値が大きい程、吸着水分量が多くなり、また、樹脂への分散性が悪化する等の欠点が生じてくる。

アマニ油吸油量は、JIS K5010に準拠して測定された値であり、 $30\text{cc}/100\text{g}$ 以下であることが必要である。この値を越えると、十分な難燃性が付与できる量の水酸化アルミニウムを樹脂に充填することが困難になるため、フライー用途として不適である。

次に請求項2の発明の数値限定理由を説明する。

バイヤー法により得られる水酸化アルミニウム2次凝集粒の1次粒子径は、 $1\sim4\mu\text{m}$ の範囲内であることが必要である。1次粒子径が $1\mu\text{m}$ より小さいと、解碎粉の吸油量は、 $30\text{cc}/100\text{g}$ を越え、 $4\mu\text{m}$ より大きいと、遠心力による解碎効果が2次凝集粒を効果的に解碎するのに十分ではなくなるため、吸油量は $30\text{cc}/100\text{g}$ を越え、平均粒子径は $8\mu\text{m}$ より大きくなる。水酸化アルミニウムの1次粒子径の測定は、電子顕微鏡による観察によつても良いが、さらに簡便には次の方法による。

第1図に示す金型1(円筒ルツボ形、直徑30mm、深さ50mm)内に、23°C、相対湿度65%の雰囲気下に1時間放置した水酸化アルミニウム2を15g装入し、油圧プレスにより $0.75\text{t}/\text{cm}^2$ の圧力で30秒間加圧する。ついで金型内から水酸化アルミニウムを取り出し、樹脂フィルム製の袋に入れ指圧により圧塊をほぐし得られた解碎粉を空気透過法により、その平均粒子径(ブレーン径)を測定する。

平均径 $1\sim4\mu\text{m}$ の1次粒子径を持つ2次凝集した水酸化アルミニウムは、例えば、米国特許第2549549号に記載のバイヤー法によつて得たアルミニ酸ナトリウム溶液にアルミニウム塩を導入してアルミナゲルを得、次にこのゲルの一部を結晶化水酸化アルミニウムに変換させ、このようにして得られた混合物を分解すべきアルミニ酸ナトリウムに導入し、攪拌を続けて極めて細かい水酸化アルミニウムの析出を誘起する方法によつて得られるが、得られた水酸化アルミニウムの1次粒子径が目的とする1次粒子径より細かい場合は、該水酸化アルミニウムを種晶として使用し、さらにアルミニ酸ナトリウム過飽和溶液を分解することによつて所望の1次粒子径を持つ2次凝集した水酸化アルミニウムを製造し得る。2次凝集した水酸化アルミニウムの2次粒子径は、本発明において特に限定するものではないが、 $20\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

連続式遠心分離装置により該水酸化アルミニウムを含むスラリーに与えられる遠心力は、重力の1000倍(1000G)以上であることが必要である。遠心力が重力の1000倍より小さいと、水酸化アルミニウムの2次凝集粒は有効に解碎されない結果、吸油量は依然として大きいままである。連続式遠心分離装置とは遠心力により連続的にスラリーを濃縮分離する装置をいい、遠心力を加えた状態で該スラリーの固形分を分離する機能を有する装置を言う。この装置の代表的ものとしては、例えば改訂四版“化学工学便覧”(化学工学協会編)P1119記載の水平型デカンター連続排出式をあげることができる。すなわち、回転する円筒、又は円すい体とわずかの差で回転するヘリカルコンベヤーを組み合わせたもので沈降固形物を連続的に排出する型式のものである。本発明における装置は同じ型式で垂直(縦)型のものであつてもよ

い。

〔作用〕

連続式遠心分離装置により、水酸化アルミニウムの2次凝集粒が有効に解碎される機構は次のように考えられる。

水酸化アルミニウムの2次凝集粒を含むスラリーが連続式遠心分離装置に導かれると、その大きな遠心効果により、固体分は遠心分離装置の回転円筒、又は円やすい体等に強く押しつけられ、2次凝集粒は互いに強く接触するようになる。このような条件下で回転円筒、又は円やすい体とわずかの差で回転するヘリカルコンベヤーにより固体分が強制的に排出される際、水酸化アルミニウムの2次凝集粒は互いに強く接触しながら移動し、その結果、互いのこすれ合いによって2次凝集粒の解碎効果が発生するものと考えられる。

この連続式遠心分離装置による解碎は、従来より用いられてきたメディア間の衝突による衝撃力を利用した粉碎法や、レイモンドローラーミル等の円筒ローラー間の摩擦効果を利用するもの、ジェットミル等の粒子間の衝突を利用した粉碎法のいずれとも異なり、解碎時に水酸化アルミニウムの2次結晶をほとんど破壊しないという点で画期的なものである。

〔実施例〕

ここで、実施例によつて、本発明の内容をさらに詳細に説明するが、本発明は、これら実施例に限定されるものではない。

バイヤー液によつて得られたアルミン酸ナトリウム溶液 (Na_2O 濃度 = 120 g / ℓ, Al_2O_3 濃度 = 120 g / ℓ) を以下の実施例、及び比較例において単にアルミネート液と省略して呼ぶこととする。

尚、樹脂フィラーとしての評価は、コンポジット鋼張り積層板で、以下の項目について行つた。

(1) ワニス粘度

| | |
|-------------|------|
| 硬化剤含有エポキシ樹脂 | 100部 |
| 水酸化アルミニウム | 70部 |
| 溶剤 | 100部 |

上記配合による25°Cにおける粘度を測定した。
10000cp以上ではガラス不織布への含浸性が悪化する。

(2) 沈降性

上記樹脂ワニスを75 g / m²のガラス不織布に含

浸乾燥させて、780 g / m²のプリプレグ（以下、プリプレグAとする）を得た。また、200 g / m²のガラス布に硬化剤を含むエポキシ樹脂ワニスを含浸乾燥させて、400 g / m²のプリプレグ（以下、プリプレグBとする）を得た。

次にプリプレグAを3枚重ね、その両面にプリプレグBを1枚ずつ介して厚さ0.018mmの銅箔を載せて積層体を得た。これを金属プレート間にはさみ、圧力50kg / cm²、170°Cで、100分間成形し、厚さ1.6mmの電気用積層板を得た。

沈降性の評価は、次の基準で行つた。
◎非常に良好：基板の反りは全くない。
○良好：基板の反りは問題になる程ではない。
×不良：基板の反りが問題となる。

15 成形時に粒子の沈降が起こると基板のそりの原因となる。

実施例 1

アルミネート液に中和当量の硫酸ばん土の水溶液を加え、ゲル状の水和アルミナ液 (Al_2O_3 換算濃度 : 170 g / ℓ) を得た。これを種子液とし、アルミネート液に種子率（種子液中の Al_2O_3 量 / アルミネート液中の Al_2O_3 量 × 100）が1%になるように加え、60°Cに保温しつつ、一昼夜攪拌を続けた。析出物を少量、沪別後、水洗、乾燥して

25 得た水酸化アルミニウムの平均粒子径は、2.7μm、1次粒子平均径は、1.5μmであつた。

得られたスラリーを連続式遠心分離装置（シャープレス・スーパ・デカンタP-660；以下、同）により、2500Gの遠心力を与えつつ、固液分離30 後、分離されたケーキを水洗・沪過・乾燥の各工程を経由させた。

得られた乾燥粉の特性値を第1表に示す。

実施例 2

実施例1において得られたスラリーに、さらに35 種子率が10%になるようにアルミネート液を加え、60°Cに保温しつつ、一昼夜攪拌を続けた。析出物を少量、沪別後、水洗、乾燥して得た水酸化アルミニウムの平均粒子径は、5.4μm、1次粒子平均径は、1.5μmであつた。

40 得られたスラリーを連続式遠心分離装置により、3000Gの遠心力を与えつつ、固液分離後、分離されたケーキを水洗・沪過・乾燥の各工程を経由させた。

得られた乾燥粉の特性値を第1表に示す。

(5)

特公 平5-4336

9

10

実施例 3

実施例2と同様に水酸化アルミニウムを製造したが、スラリーに与えた遠心力は1500Gであつた。

得られた乾燥粉の特性値を第1表に示す。

実施例 4

実施例1において得られたスラリーに、さらに、種子率が5%になるようにアルミニート液を加え、60°Cに保温しつつ、一昼夜搅拌を続けた。析出物を少量、沪別後、水洗、乾燥して得た水酸化アルミニウムの平均粒子径は、7.9μm、1次粒子平均径は、3.3μmであつた。

得られたスラリーを連続式遠心分離装置により、3000Gの遠心力を与えつつ、固液分離後、分離されたケーキを水洗・沪過・乾燥の各工程を経*
*由させた。

得られた乾燥粉の特性値を第1表に示す。

実施例 5

実施例1において得られたスラリーに、さらに種子率が2%になるようにアルミニート液を加え、60°Cに保温しつつ、一昼夜搅拌を続けた。析出物を少量、沪別後、水洗、乾燥して得た水酸化アルミニウムの平均粒子径は、11.7μm、1次粒子平均径は、3.7μmであつた。

得られたスラリーを連続式遠心分離装置により、3000Gの遠心力を与えつつ、固液分離後、分離されたケーキを水洗・沪過・乾燥の各工程を経由させた。

得られた乾燥粉の特性値を第1表に示す。

第 1 表

| 特性値/実施例No. | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
|----------------------------|------|------|------|------|------|
| 平均粒子径(沈降法) (μm) | 2.1 | 3.2 | 3.9 | 5.5 | 7.9 |
| 球近似比表面積・ S_c (m^2/g) | 1.2 | 0.77 | 0.63 | 0.45 | 0.3 |
| BET比表面積・ S_R (m^2/g) | 2.8 | 1.7 | 1.6 | 1.0 | 0.9 |
| 表面粗度係数 S_R/S_c | 2.3 | 2.2 | 2.5 | 2.2 | 2.9 |
| アマニ油吸油量 ($cc/100g$) | 30 | 23 | 28 | 23 | 29 |
| 水分(110°C・2h) (%) | 0.08 | 0.05 | 0.05 | 0.04 | 0.04 |
| ワニス粘度 (cp) | 9600 | 5800 | 8800 | 6100 | 9000 |
| 沈降性 | ◎ | ◎ | ◎ | ○ | ○ |

比較例 1

アルミニート液に中和当量の硫酸ばん土の水溶液を加え、ゲル状の水和アルミナ液 (Al_2O_3 換算濃度: 170g/ℓ)を得た。これを種子液とし、アルミニート液に種子率が2%になるように加え、60°Cに保温しつつ、一昼夜搅拌を続けた。析出物を少量、沪別後、水洗、乾燥して得た水酸化アルミニウムの平均粒子径は、1.7μm、1次粒子平均径は、0.8μmであつた。

得られたスラリーを連続式遠心分離装置により、2800Gの遠心力を与えつつ、固液分離後、分離されたケーキを水洗・沪過・乾燥の各工程を経由させた。

得られた乾燥粉の特性値を第2表に示す。

比較例 2

実施例2において得られたスラリーに、さらに種子率が30%になるようにアルミニート液を加

え、60°Cに保温しつつ、一昼夜搅拌を続けた。析出物を少量、沪別後、水洗、乾燥して得た水酸化アルミニウムの平均粒子径は、20.2μm、1次粒子平均径は、5.2μmであつた。

得られたスラリーを連続式遠心分離装置により、3000Gの遠心力を与えつつ、固液分離後、分離されたケーキを水洗・沪過・乾燥の各工程を経由させた。

得られた乾燥粉の特性値を第2表に示す。

比較例 3

実施例2と同様に水酸化アルミニウムを製造したが、スラリーに与えた遠心力は500Gであつた。

得られた乾燥粉の特性値を第2表に示す。

比較例 4

実施例2において得られたスラリーをラボの遠心分離装置で固液分離後、液分を捨て、固体分の洗浄・乾燥を行なつた。

11

12

得られた乾燥粉の特性値を第2表に示す。

比較例 5

実施例4において得られたスラリーを通常のフィルターで沪過後、洗浄、乾燥を行なつた。

得られた乾燥粉をアトライター（三井三池化工*

第 2 表

| 特性値／実施例No | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
|----------------------------|-------|-------|-------|-------|------|------|
| 平均粒子径(沈降法) (μm) | 1.7 | 12.6 | 5.1 | 2.7 | 3.4 | 3.8 |
| 球近似比表面積・ S_c (m^2/g) | 1.5 | 0.20 | 0.49 | 0.8 | 0.73 | 0.65 |
| BET比表面積・ S_R (m^2/g) | 3.1 | 0.72 | 1.3 | 2.3 | 3.0 | 4.2 |
| 表面粗度係数 S_R/S_c | 2.1 | 3.6 | 2.7 | 2.9 | 4.1 | 6.5 |
| アマニ油吸油量 (cc/100g) | 32 | 35 | 42 | 45 | 25 | 25 |
| 水分(110°C・2h) (%) | 0.09 | 0.03 | 0.04 | 0.07 | 0.24 | 0.22 |
| ワニス粘度 (cp) | 11000 | 12700 | 13400 | 14200 | 7200 | 7500 |
| 沈降性 | ◎ | × | ○ | ◎ | ◎ | ◎ |

〔発明の効果〕

本発明により得られた水酸化アルミニウムは、従来の微粒水酸化アルミニウムにおいて不可能であつた低比表面積と低吸油量の両立を達成している所に、その優れた価値が認められる。また、本発明による水酸化アルミニウムの製造方法のポイントである連続式遠心分離装置による2次凝集粒の解碎法は、チッピングを起こす事なく、1次粒 25

*機) によって20分間粉碎することにより得られた粉碎粉の特性値を第2表に示す。

比較例 6

市販の粉碎微粒水酸化アルミニウム（日本軽金属社製BW-703）の特性値を第2表に示す。

子まで解碎できるという点で全く画期的であり、また、極めて優れたプロセスであり、その工業的価値は大である。

図面の簡単な説明

第1図は、水酸化アルミニウムの1次粒子平均径測定のための加圧解碎法に使用する金型の断面図である。

第 1 図

